

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月21日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22740264

研究課題名（和文） 極紫外自由電子レーザーによる角度分解光電子分光

研究課題名（英文） Angle-resolved photoelectron spectroscopy by EUV-FEL

研究代表者

福澤 宏宣（FUKUZAWA HIRONOBU）

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号：40541834

研究成果の概要（和文）：極紫外自由電子レーザーという全く新しい高強度短波長光源を用いた気相原子・分子の角度分解光電子分光法を確立し、希ガス原子と希ガスクラスターの多光子イオン化過程を明らかにした。光学レーザーと組み合わせたポンプ・プローブ計測による"時間分解"光電子分光法を確立した。

研究成果の概要（英文）：Angle-resolved photoelectron spectroscopy using free-electron laser has been developed. Multi-photon ionization of rare gas atoms and rare gas clusters have been clarified. Time-resolved photoelectron spectroscopy using combination of free-electron laser and optical laser have been also developed.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2011年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：原子・分子

1. 研究開始当初の背景

自由電子レーザー（FEL）は真空紫外からX線でも利用できる高強度なコヒーレント光であり、原子・分子・クラスター科学の新たな研究領域を切り開く光源として期待されている。X線FELは日米独の3ヶ所で研究開始当初開発中であった。波長100nm以下の極紫外（EUV）FELはドイツの施設FLASH（free-electron laser at Hamburg）および前身のTTF（TESLA test facility）で最初は利用可能であったが、研究開始当初に日本でも理研播磨研究所にてX線FEL試験加速器（SCSS試験加速器）から50-62nmの領域のFEL

が発振されるようになっていた。

光と物質の相互作用を研究する上で、光電子分光は常套的に用いられる手法であり、実験技術的には確立したものと考えられている。しかし、日本のEUV-FEL光源を用いた光電子分光は不可能な状況であった。その理由は以下のようなものである。EUV-FEL光源は、極めて強度が強く、かつ1光子ですべての物質をイオン化できる光子エネルギーである。そのために、ほんのわずかでも散乱光や迷光が反応領域に到達し、電極や壁と衝突した場合には、大量の電子を生成する。光イオン化によって生成するイオンを観測する場合には、観

測の対象となるイオン種とそうでないイオン種との区別は比較的容易である。しかし、電子の観測では、観測の対象となる電子とそうでないバックグラウンドの電子を区別することはほとんど不可能である。したがってバックグラウンドを取り除くことが必須である。EUV-FEL を利用した実験はドイツでの研究が先行しているが、電子を観測した報告はイオンを観測した報告に比べて極めて少なく、EUV-FEL を光源とした光電子分光の難しさを物語っている。さらに日本の EUV-FEL のエネルギー領域では、光の反射率が高く（散乱光や迷光を生成し易く）、ほぼ全ての物質の光イオン化断面積が最大に近いため、ドイツの EUV-FEL と比べてバックグラウンドの寄与がはるかに高くなり、電子観測をさらに難しいものとしている。このため、これまで日本の EUV-FEL では光電子分光の成功例はなく、非常に挑戦的な主題であった。

申請者は本研究課題開始までに、放射光を用いた原子・分子の励起・イオン化の研究を行ってきており、EUV-FEL を用いた原子・分子の多重イオン化に関する研究も開始していた。EUV-FEL の高強度パルスと物質の相互作用を理解する上で、あるいは EUV-FEL の短パルス性を生かした時間分解分光を考案する上で、光電子分光は最も有効な研究手段である。しかしながら、それまで、日本の EUV-FEL を光源とした光電子スペクトルは観測されていなかった。EUV-FEL の波長（50-62nm）では、ほとんど全ての物質が1光子吸収によりイオン化される。したがって、残留ガスや壁面からも、電子が放出される。これらの寄与を抑制することは、光強度が極端に強いために、極めて難しい。実際、申請者も日本の EUV-FEL を光源とした光電子分光に何度か挑戦し、散乱光や迷光が原因となって光電子分光が出来ないことを突き止めていた。

2. 研究の目的

本研究では、EUV-FEL という全く新しい高強度短波長光源を用いた気相原子・分子の角度分解光電子分光法を確立し、希ガス原子の段階的多重イオン化の機構と経路を明らかにするとともに、光学レーザーによって解離性状態へ励起が可能な分子を標的とし、光学レーザーと組み合わせたポンプ・プローブ計測による“時間分解”光電子分光法を確立することを目的とした。

3. 研究の方法

光電子放出角度分布を測定する手法としては、観測する電子放出角度が小さい電子分光器を複数個組み合わせる方法と、位置敏感検出器に電場を用いて全立体角に放出される電子を一度に検出する速度画像型の方法

がある。本研究では後者を採用し、EUV-FEL 利用実験に最適化した速度画像型電子分光器を設計・製作した。制作した電子分光器を、東北大学所有のフェムト秒レーザーを用いて動作試験を行った。また、EUV-FEL 照射によるイオン化により生成する電子を観測する上で大きな障害となる迷光・散乱光を除去するための光子バッフルユニットを設計・製作した。

製作した電子分光器とバッフルユニットを理研播磨研究所の EUV-FEL 実験施設に持ち込み、希ガス原子の段階的多重イオン化により放出される光電子放出角度分布の測定をした。さらに標的を希ガスクラスターとした測定を行った。

EUV-FEL と IR レーザーを空間的・時間的に重ねて照射する手法を確立し、ヘリウム原子を標的としたポンプ・プローブ計測を実施した。EUV-FEL の光エネルギーをヘリウム原子のイオン化しきい値よりも少し低く設定すると、1光子吸収ではイオン化が起こらないが、EUV-FEL と IR レーザーを重ねて照射すると EUV-FEL 照射によりリドベルグ状態に励起されたヘリウム原子が IR レーザーによってイオン化され、光電子を放出する。このような EUV-FEL のみ照射、IR レーザーのみ照射のときには得られない光電子分布測定を行った。

4. 研究成果

(1) アルゴン原子の3光子2重イオン化

中性アルゴン原子のイオン化エネルギーは約16 eVなので、EUV-FEL 1光子でイオン化が起こる。1価アルゴン原子イオンのイオン化エネルギーは約28 eVなので、1光子ではイオン化が起こらず2光子吸収によってイオン化が起こる。このようなアルゴン原子の3光子2重イオン化過程で放出される光電子の放出角度分布を測定することにより、このような過程ではアルゴン1価原子イオンの自動イオン化状態が重要な役割を担っていることが明らかになった。

(2) ヘリウム原子の2光子イオン化

中性ヘリウム原子のイオン化エネルギーは24.4 eVであるので、EUV-FEL光の1光子吸収ではイオンが起こらず、イオン化には2光子が必要である。本研究では光子エネルギーをヘリウム原子の最低励起エネルギー以下、励起エネルギー、リドベルグ状態のエネルギーに合わせて光電子放出角度分布測定を行った。得られた分布（図1）には放出される光電子s波とd波の干渉が観測され、共鳴2光子吸収過程と非共鳴2光子吸収過程が競争していることが明らかになった。

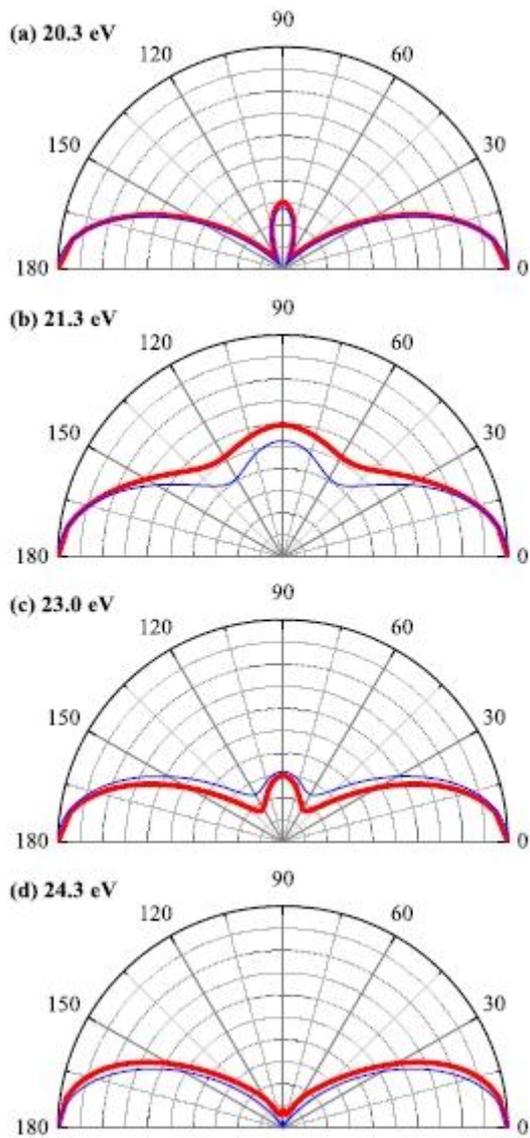


図1. EUV-FELパルスによるヘリウム原子の2光子イオン化における光電子角度分布

(3) ネオンクラスターの光電子放出角度分布

ネオン原子の集合体であるネオンクラスターにEUV-FEL光を照射すると、クラスター内の複数の原子が同時に励起され、複数のリドベルグ状態が形成されると考えられる。このとき、クラスター内イオン化を通じてナノプラズマが形成され、熱的な電子放出によってイオン化が起こる可能性がある。一方で、光強度が強くなれば2光子吸収によるイオン化が増加すると考えられる。すなわち、光強度の増加に伴いナノプラズマから2光子イオン化への機構クロスオーバーが期待される。本研究では集光したEUV-FELパルス光を、平均クラスターサイズが約5000のネオンクラスターに照射し、電子エネルギー分布を測定した。得られたエネルギー分布の低エネルギー領域にはマックスウェル-ボルツマン分布に類似し

た構造が、高エネルギー領域には幅の広いピーク構造が見られ、これら構造はそれぞれ全く異なる光強度依存性を示していた。この結果は、まさに上記のナノプラズマから二光子イオン化への機構のクロスオーバーを示していると考えられる。

(4) ヘリウム原子の時間分解光電子放出角度分布

EUV-FELパルスによりヘリウム原子にリドベルグ波束を生成し、光学レーザーパルスによりイオン化して光電子放出角度分布を測定した。また、2つのレーザーパルスの時間差を変えることで時間分解光電子放出角度分布測定を行った。2つのレーザーパルスが重なった場合と、光学レーザーが遅れて照射された場合とでs波とd波の位相差が大きく変わり、光電子角度分布の変化として観測された。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

- ① E. V. Gryzlova, Ri Ma, H. Fukuzawa, K. Motomura, A. Yamada, K. Ueda, A. N. Grum-Grzhimailo, N. M. Kabachnik, S. I. Strakhova, A. Rouzée, A. Hundermark, M. J. J. Vrakking, P. Johnsson, K. Nagaya, S. Yase, Y. Mizoguchi, M. Yao, M. Nagasono, K. Tono, T. Togashi, Y. Senba, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, Doubly resonant three-photon double ionization of Ar atoms induced by an EUV free-electron laser, *Physical Review A*, 査読有, 84巻, 2011, 063405-1~063405-4
- ② A. Rouzée, P. Johnsson, E. V. Gryzlova, H. Fukuzawa, A. Yamada, W. Siu, Y. Huismans, E. Louis, F. Bijkerk, D. M. P. Holland, A. N. Grum-Grzhimailo, N. M. Kabachinik, M. J. J. Vrakking, K. Ueda, Angle-resolved photoelectron spectroscopy of sequential three-photon triple ionization of neon at 90.5 eV photon energy, *Physical Review A*, 査読有, 83巻, 2011, 031401-1~031401-1

[学会発表] (計9件)

- ① 八瀬哲史、永谷清信、溝口悠里、八尾誠、福澤宏宣、本村幸治、山田綾子、Ri Ma、上田潔、齋藤則生、Arnaud Rouzée、Axel Hundermark、Marc Vrakking、Per Johnsson、永園充、富樫格、登野健介、

- 矢橋牧名、石川哲也、大橋治彦、仙波泰徳、ネオン・クラスターのEUV-FEL誘起イオン化のクロスオーバー、日本物理学会第67回年次大会、2012年3月24~27日、西宮
- ② Hironobu Fukuzawa, Electron and ion spectroscopy using FEL、7th Gordon Research Conference on Photoions, Photoionization and Photodetachment、2012年2月12~17日、Galveston, Texas, U. S. A.
- ③ 八瀬哲史、永谷清信、溝口悠里、八尾誠、福澤宏宣、本村幸治、山田綾子、Ri Ma、上田潔、齋藤則生、Arnaud Rouzée、Axel Hundermark、Marc Vrakking、Per Johnsson、永園充、富樫格、登野健介、矢橋牧名、石川哲也、大橋治彦、木村洋昭、仙波泰徳、ネオン・クラスターのEUV-FEL誘起イオン化のクロスオーバー、第25回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム、2012年1月6~9日、鳥栖
- ④ S. Yase, K. Nagaya, Y. Mizoguchi, M. Yao, H. Fukuzawa, K. Motomura, A. Yamada, R. Ma, K. Ueda, N. Saito, A. Rouzee, A. Hundermark, M. Vrakking, P. Johnsson, M. Nagasono, T. Togashi, K. Tono, M. Yabashi, T. Ishikawa, H. Ohashi, Y. Senba, Photoelectron Spectroscopy of Neon Clusters using Extreme Ultraviolet Free Electron Laser、International Workshop DyNano-2011、2011年10月4~7日、Kyoto, Japan
- ⑤ 八瀬哲志、永谷清信、溝口悠里、八尾誠、福澤宏宣、本村幸治、山田綾子、Ri Ma、上田潔、齋藤則生、Arnaud Rouzee、Axel Hundermark、Marc Vrakking、Per Johnsson、永園充、富樫格、登野健介、矢橋牧名、石川哲也、大橋治彦、仙波泰徳、Neクラスターの光電子分光 - 極紫外 FEL における velocity map imaging 計測 -、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 21~24 日、富山
- ⑥ 八瀬哲史、永谷清信、溝口悠里、八尾誠、福澤宏宣、本村幸治、山田綾子、Ri Ma、上田潔、齋藤則生、Arnaud Rouzée、Axel Hundermark、Marc Vrakking、Per Johnsson、永園充、富樫格、登野健介、矢橋牧名、石川哲也、大橋治彦、仙波泰徳、希ガスクラスターの光電子分光 - 極紫外 FEL における velocity map imaging 計測 -、日本物理学会第 66 回年次大会、2011 年 3 月 25~28 日、新潟
- ⑦ 永谷清信、岩山洋士、杉島明典、溝口悠里、八尾誠、福澤宏宣、Liu XiaoJing、本村幸治、山田綾子、奥西みさき、嶋田浩三、上田潔、齋藤則生、Paolo Piseri、Tommaso Mazza、Michele Devetta、Marcello Coreno、永園充、富樫格、登野健介、矢橋牧名、石川哲也、大橋治彦、木村洋昭、仙波泰徳、EUV-FEL 照射によるキセノン・クラスターのイオン化抑制、第 24 回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム、2011 年 1 月 7~10 日、つくば
- ⑧ K. Nagaya, A. Sugishima, Y. Mizoguchi, H. Iwayama, M. Yao, H. Fukuzawa, K. Motomura, A. Yamada, K. Ueda, N. Saito, P. Piseri, T. Mazza, M. Devetta, M. Coreno, M. Nagasono, K. Tono, M. Yabashi, T. Ishikawa, H. Ohashi, H. Kimura, T. Togashi, Y. Senba, Photoelectron spectroscopy of giant cluster irradiated by EUV free-electron laser at SPring-8、2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACIFICHEM 2010)、2010 年 12 月 15~20 日、Honolulu, Hawaii, U. S. A.
- ⑨ 永谷清信、岩山洋士、杉島明典、溝口悠里、八尾誠、福澤宏宣、Liu XiaoJing、本村幸治、山田綾子、上田潔、齋藤則生、Piseri Paolo, Mazza Tommaso, Devetta Michele, Coreno Marcello, 永園充、富樫格、登野健介、矢橋牧名、石川哲也、大橋治彦、木村洋昭、仙波泰徳、電子分光による極紫外 FEL 照射下でのクラスターのイオン化抑制の観測、第 4 回分子科学討論会、2010 年 9 月 14~17 日、大阪

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

○取得状況(計 0 件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

福澤 宏宣 (FUKUZAWA HIRONOBU)

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号：40541834

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

上田 潔 (UEDA KIYOSHI)

東北大学・多元物質科学研究所・教授

研究者番号：50151791

奥西 みさき (OKUNISHI MISAKI)
東北大学・多元物質科学研究所・助教
研究者番号：80224161

齋藤 則生 (SAITO NORIO)
産業技術総合研究所・計測標準研究部門・
室長
研究者番号：80344191